

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

Jc971 U.S. PTO  
10/087238



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日  
Date of Application:

2001年 3月15日

出願番号  
Application Number:

特願2001-073839

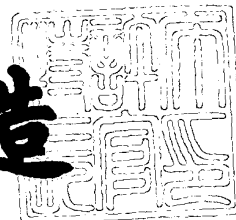
出願人  
Applicant(s):

日石三菱株式会社

2001年11月16日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3100935

【書類名】 特許願  
【整理番号】 11-0278  
【提出日】 平成13年 3月15日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 B01J 8/24  
【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県鎌倉市寺分 2 - 1 7 - 1 0

【氏名】 池田 米一

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市中区千鳥町 8 番地 日石三菱株式会社中央技術研究所内

【氏名】 藤山 優一郎

【特許出願人】

【識別番号】 000004444

【氏名又は名称】 日石三菱株式会社

【代理人】

【識別番号】 100103285

【弁理士】

【氏名又は名称】 森田 順之

【選任した代理人】

【識別番号】 100093540

【弁理士】

【氏名又は名称】 岡澤 英世

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 073406

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1  
【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 流動化粒子の排出輸送方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 濃厚流動層から当該濃厚流動層よりも直径の小さい高速輸送層に流動化粒子を上方へ排出輸送する方法において、濃厚流動層と高速輸送層の間に少なくとも 1 個の中間円筒部を設けることを特徴とする流動化粒子の排出輸送方法。

【請求項 2】 前記中間円筒部の直径が、濃厚流動層の直径の  $1/3 \sim 2/3$  倍であることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】 前記中間円筒部の高さが、中間円筒部の直径の  $1 \sim 6$  倍であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の方法。

【請求項 4】 前記中間円筒部が、円錐部によって濃厚流動層及び高速輸送層に結合していることを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれかの項に記載の方法。

【請求項 5】 前記円錐部のうち、濃厚流動層に直接結合する円錐部の仰角が  $40 \sim 80^\circ$  であることを特徴とする請求項 1 ないし 4 のいずれかの項に記載の方法。

【請求項 6】 前記中間円筒部が一つであることを特徴とする請求項 1 ないし 5 のいずれかの項に記載の方法。

【請求項 7】 流動化粒子の平均粒子径が  $30 \sim 90 \mu\text{m}$  であり、流動化のためのガス空塔速度が濃厚流動層において  $0.3 \sim 1.2 \text{ m/s}$ 、高速輸送層において  $3 \sim 30 \text{ m/s}$  である請求項 1 ないし 6 のいずれかの項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、濃厚流動層から当該濃厚流動層よりも直径の小さい高速輸送層へ流動化粒子を円滑に排出輸送する方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、流動層は粒子やガスの処理や化学反応などに広く利用されている。流動層には様々な形式があり、特に流動化粒子を外部と連続的に循環している循環流動層は、石油接触分解など触媒の連続再生を必要とする反応へ広く適用されている。

#### 【0003】

このような循環流動層では操業の安定化や反応成績の向上などのために、流動化粒子の安定した連続的循環が必要であり、それには流動層からの円滑な連続排出や輸送、供給などが重要である。近年、特に高性能を示す石油接触分解法として下降流型流動接触分解方式（以下ダウンナー型FCCと呼ぶ。）が提案されているが、その方式では分解反応部で触媒が下方に移動するので、それ以降では触媒の再生とともに上方に円滑に輸送する必要がある。本発明は特にこのような場合に適用して最大の効果を発揮する。

#### 【0004】

##### 【従来の技術】

従来のダウンナー型FCCの代表例として特許公報第2, 523, 325号や第2, 590, 009号などがあげられる。これらの方法では触媒の再生部を濃厚流動層とし、その上部を円錐状として上部の高速輸送層（以下ライザーと呼ぶ。）と結合することによって、触媒の連続的再生とともにダウンナー（ダウンフローリアクター）で必要とする十分な高さまでの上方への輸送、排出とを可能としている。このような方式では再生反応に必要な十分な接触時間を濃厚流動層において確保できるとともに、再生された触媒の上方への排出、輸送を何等余分なガスや機械的操作などを加えることなく、ライザーによって再生ガスのみで可能としている。

#### 【0005】

しかし、このような方式は原理的には優れているが、流動化状態の固有の時間的、位置的な変動のために濃厚流動層からライザーに至る粒子輸送量の変動が避けられない。その結果、ライザーの圧力損失や再生部の粒子滞留時間などが変動し、さらにダウンナーの分解部や触媒分離部、付着油の分離部などの変動が要因となり、反応成績の低下や操業状態の不安定化などの障害が発生する。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は以上のような濃厚流動層からの流動化粒子の排出とライザーによる粒子輸送の変動を減少して安定した均一輸送を達成し、しかも構造が簡単であり、磨耗や故障などのトラブルが発生し難い方法を提供するものである。さらに特にこの方法をダウンナー型FCCなどの循環流動層方式へ適用するならば操業の安定化とともに、再生や分解反応が十分に進行して反応成績の向上が可能となる。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明は、濃厚流動層から当該濃厚流動層よりも直径の小さい高速輸送層に流動化粒子を上方へ排出輸送する方法において、濃厚流動層と高速輸送層の間に少なくとも1個の中間円筒部を設けることを特徴とする流動化粒子の排出輸送方法に関する。

【0008】

本発明においては、前記中間円筒部の直径が濃厚流動層の直径の $1/3 \sim 2/3$ 倍であることが好ましい。

【0009】

本発明においては、前記中間円筒部の高さが直径の $1 \sim 6$ 倍であることが好ましい。

【0010】

本発明においては、前記中間円筒部が、円錐部によって濃厚流動層及び高速輸送層に結合していることが好ましい。

【0011】

本発明においては、前記円錐部のうち、濃厚流動層に直接結合する円錐部の仰角が $40 \sim 80^\circ$ であることが好ましい。

【0012】

本発明においては、前記中間円筒部が一つであることが好ましい。

【0013】

本発明においては、流動化粒子の平均粒子径が $30 \sim 90 \mu\text{m}$ であり、流動化

のためのガス空塔速度が濃厚流動層において $0.3 \sim 1.2 \text{ m/s}$ 、高速輸送層において $3 \sim 30 \text{ m/s}$ であることが好ましい。

#### 【0014】

##### 【発明の実施の形態】

以下に本発明を詳述する。

##### 1) 流動化状態とその選定

触媒反応に対してはガスと粒子の接触が良好な均一流動状態は、平均粒子径が $30 \sim 90 \mu\text{m}$ 、好ましくは $50 \sim 70 \mu\text{m}$ であるような微粉粒子を用いることによって実現されている。またこのような粒子の場合、流動化ガスの空塔速度が $0.3 \sim 1.2 \text{ m/s}$ 、好ましくは $0.4 \sim 1 \text{ m/s}$ において比較的流動層密度の大きい通常、濃厚流動層が形成される。なおこれは気泡流動層および乱流流動層と分けて呼ばれることが多い。

#### 【0015】

またそのガス空塔速度が $3 \sim 30 \text{ m/s}$ 、好ましくは $5 \sim 20 \text{ m/s}$ においては比較的層密度が小さく、粒子が高速で輸送される高速輸送層となる。なおこれは稀薄輸送層、気流輸送、さらにはライザーと呼ばれることが多い。濃厚流動層は流動層温度が均一となり、粒子滞留時間が大きくできるなどの特徴があるので、再生反応のような一定温度で比較的長時間の反応が望まれる場合に適している。また高速輸送層は粒子がガスとともに高速度で輸送されるので、粒子輸送に適している。本発明においてはこれら両者の選定と組合わせが基本となる。

#### 【0016】

##### 2) 粒子輸送とその調節

濃厚流動層からの流動化粒子の排出・輸送量は、ガス空塔速度が大きいほど多くなり、また流動層が高くなって、その上部空間（以下フリーボードと呼ぶ。）が短くなるほど多くなる。先に述べたようにガス空塔速度は濃厚流動層形成のための制限があるので、粒子輸送量が増大するためには流動層高さを増大してフリーボード部を減少させる必要がある。通常、従来のFCCなどは循環流動層が必要とする触媒循環量は比較的多量であって、それだけの粒子量を排出するためにはフリーボードを著しく小さくしなければならない。

【0017】

濃厚流動層の表面付近を観察すると、時間的、位置的に極めて不均一であり、層内から上昇してできる気泡の破裂とともに、粒子が集合体（クラスター）となって飛び出し、上昇とともに崩壊し、一部の粒子の降下と残部の上昇とを繰り返している。前述したような低いフリーボードにおいては、前述した特許のように上部が円錐状であってもクラスターが十分に崩壊することなく、そこを通過して高速輸送層まで到達してしまう。その結果、輸送量や圧力損失の変動などが発生する。

【0018】

## 3) 本発明の特徴

本発明においては、濃厚流動層から当該濃厚流動層よりも直径の小さい高速輸送層に流動化粒子を上方へ排出輸送する方法において、濃厚流動層と高速輸送層の間に少なくとも1個の中間円筒部を設けることを特徴とするものである。

【0019】

本発明において、中間円筒部としては、通常の円筒形態である下部と上部の直径が同じものだけに限られるものではなく、下部と上部の直径が異なるものであっても実質上円筒状のものは含まれる意味である。すなわち、下部の直径が上部の直径よりも大きいようなものであっても、例えば仰角が $85^{\circ}$ 以上の実質上円筒状のものも含まれる。また中央部がやや膨らんだり、あるいは凹んだりした円筒状のものも含まれる。

【0020】

中間円筒部の直径は、濃厚流動層の直径の $1/3 \sim 2/3$ 倍であることが好ましく、さらに $2/5 \sim 3/5$ であることがより好ましい。このような好ましい条件下では中間円筒部のガス速度は濃厚流動層のガス空塔速度の約 $3 \sim 6$ 倍に達し、先の粒子クラスターを崩壊させるのに十分な値となる。また、中間円筒部の直径は、高速輸送層の直径の $1.2 \sim 7$ 倍であることが好ましく、 $1.5 \sim 5$ 倍であることがより好ましい。

【0021】

中間円筒部の高さは、中間円筒部の直径の $1 \sim 6$ 倍であることが好ましく、 $1$



・ 5～4 倍であることがより好ましい。中間円筒部の高さが中間円筒部の直径の 1 倍より低いとクラスターの崩壊が不十分となり、粒子のガス中への分散が不均一となり、本発明の効果が十分に発揮されない場合がある。また、中間円筒部の高さを中間円筒部の直径の 6 倍より高くしても効果があまり変わらないため、装置の高さが大きくなる分コスト面で不利となる場合がある。

中間円筒部は、複数個設けることもできる。しかしながら、複数に増大しても、構造が複雑になるばかりで、効果はほとんど変わらない場合があり、中間円筒部は 1 個であることが好ましい。

#### 【0022】

中間円筒部は、円錐部によって濃厚流動層及び高速輸送層に結合されていることが好ましい。

#### 【0023】

円錐部の仰角に特に制限はないが、 $40^{\circ} \sim 80^{\circ}$  であることが好ましい。特に、濃厚流動層に一番近い最下部の円錐部は  $40^{\circ} \sim 80^{\circ}$  の仰角を有することが好ましく、 $45^{\circ} \sim 75^{\circ}$  であることがより好ましい。円錐部の仰角が  $40^{\circ}$  未満になると円錐状にした効果が少なく、粒子がガス流れから分離されやすくなる恐れがある。また  $80^{\circ}$  より大きくなると円錐部高さが増大するだけで効果はそれほど大きくなり、装置の高さが増大する分コスト面で不利となる場合がある。

#### 【0024】

また、濃厚流動層に結合する円錐部と、高速輸送層に結合する円錐部の仰角は、それぞれ同じであっても良いし、また異なっても良い。

また、一つの円錐部は、単一の仰角を有する円錐部一つで構成されていても良いし、異なる仰角を有する複数の円錐部の複合であっても良い。しかしながら、単一の仰角を有する円錐部一つで構成されていることが好ましい。

#### 【0025】

##### 【発明の効果】

本発明の方法では、下部円錐部を通して上昇してきたクラスターは中間円筒部を上昇中に崩壊して、粒子がガス中にほぼ均一に分散して上昇するようになる。このために濃厚流動層からの流動化粒子の排出とライザーによる粒子輸送の変動

が減少し、高速輸送層における粒子輸送量や圧力損失の変動がほとんど消滅して安定した均一輸送が達成できる。

また本発明では内部に実質的な構造物を必要としないので、装置の磨耗や粒子の破碎などのトラブルを発生することがない。

【 0 0 2 6 】

【実施例】

以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明する。

【 0 0 2 7 】

[実施例]

1) 実験装置

実験装置は2段円錐型であり、各部は透明プラスチック製であって内部が観察できるようになっている。ライザー下部の圧力変動はストレンゲージで測定した。

図1に実験装置のフローを示す。

各部の仕様は以下の通りである。

- |            |    |                                |                                       |
|------------|----|--------------------------------|---------------------------------------|
| 濃厚流動層部 (1) | 直径 | $D_{\gamma}=5.0\text{ cm}$ 、高さ | $H_{\gamma}=30\text{ m}$              |
| 下部円錐部 (2)  | 仰角 | $\theta_1=60^\circ$ 、          | 高さ $H_{C1}=2.0\text{ cm}$             |
| 中間円筒部 (3)  | 直径 | $D_P=2.6\text{ cm}$ 、高さ        | $H_P=10\text{ cm}$ 、<br>$H_P/D_P=3.8$ |
| 上部円錐部 (4)  | 仰角 | $\theta_2=60^\circ$ 、          | 高さ $H_{C2}=1.3\text{ cm}$             |
| ライザー部 (5)  | 直径 | $D_R=1.1\text{ cm}$ 、高さ        | $H_R=1.5\text{ m}$                    |

【 0 0 2 8 】

2) 実験条件

流動化粒子の平均粒径は約  $60\text{ }\mu\text{ m}$ 、嵩密度  $0.827\text{ g/cm}^3$  の通常の FCC 触媒を用い、流動化ガスには常温常圧の空気を用いた。

その他の条件は以下の通りである。

- |         |                       |
|---------|-----------------------|
| 粒子充填量   | $W_S=325\text{ g}$    |
| 静止層高    | $L_q=20\text{ cm}$    |
| 流動化ガス流量 | $V_G=40\text{ L/min}$ |

このときの各部のガス空塔速度は以下の通りである。

濃厚流動層部  $u_0 = 33 \text{ cm/s}$

中間円筒部  $u_p = 1.25 \text{ m/s}$

ライザー部  $u_R = 7.0 \text{ m/s}$

【0029】

### 3) 実験結果

濃厚流動層密度  $\rho_f = 0.517 \text{ g/cm}^3$

流動層高さ  $L_f > 30 \text{ cm}$

粒子輸送循環量  $E_S = F_S = 4.8 \text{ g/s}$

ライザー部の平均圧力変動  $\Delta P_R = 78.4 \text{ Pa (8 mm a q)}$

【0030】

### 4) 観察結果

流動層から飛び出してくるクラスターがフリーボード内で崩壊し、ライザー（5）内では粒子がガス中にほぼ均一に分散して上昇しているのが観察された。またサイクロン分離器（6）への粒子負荷の時間的変動がみられず、サイクロン分離器（6）から粒子降下循環ライン（7）の閉塞が起こらなかった。

【0031】

#### 【比較例】

上記実験装置から中間円筒部を除いて円錐部（2）から直接ライザー（5）へと結合し、その他は同一とした実験装置を用いて同一条件で実験を行った。その結果、ライザー部の圧力変動は  $127.4 \text{ Pa (13 mm a q)}$  であり、実施例に比べ約 1.6 倍に増大し、流動層から上昇してくるクラスターの崩壊は不完全であり、その大部分がそのまま円錐部を通過してライザーに到達し、粒子群が濃度の高い縦縞状となって時間的に変動しながら輸送されているのが観察された。またサイクロンやそれ以降の粒子降下循環ラインへの粒子負荷が変動してしばしば閉塞トラブルが発生した。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【図1】

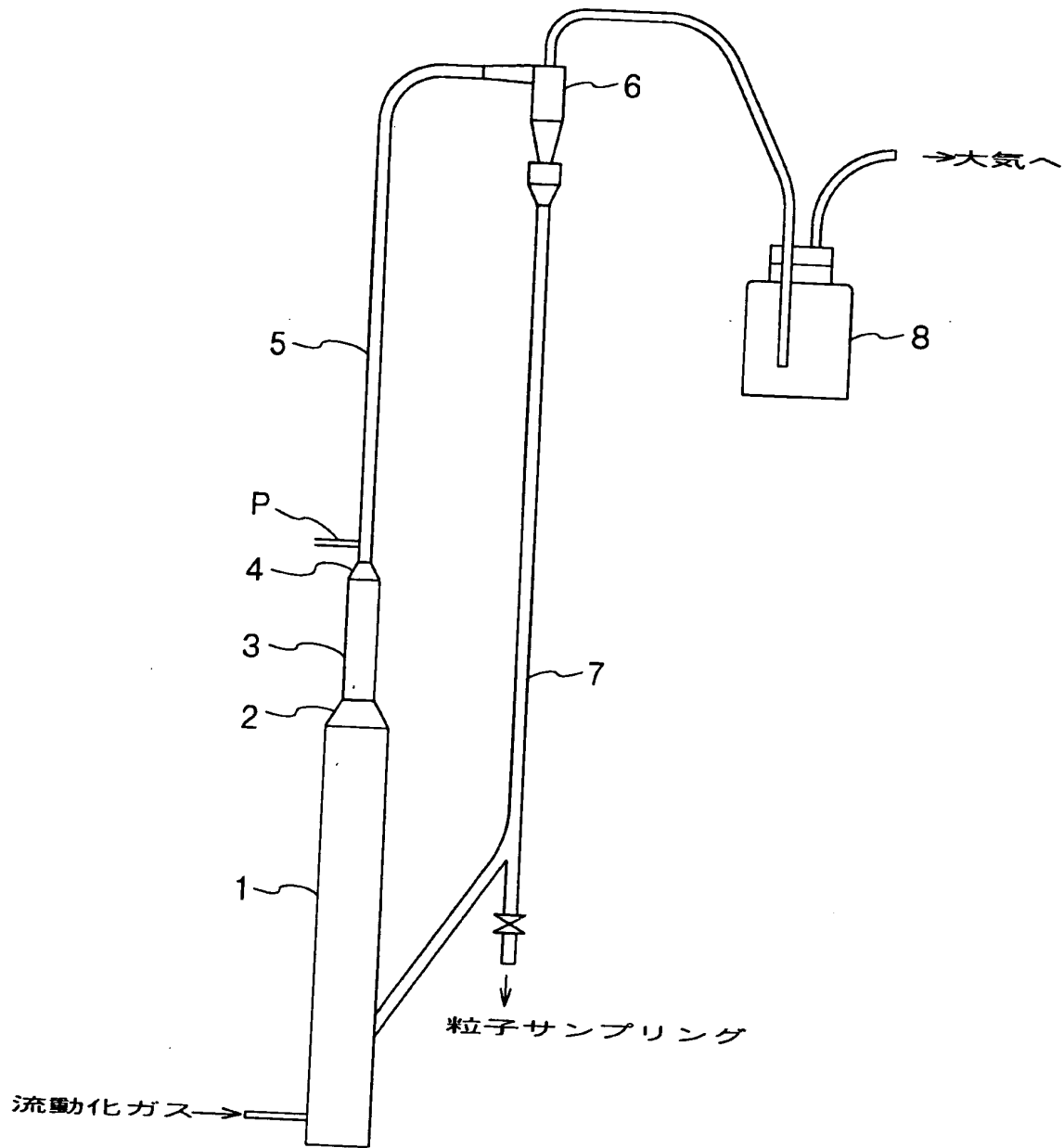
実施例で用いた実験装置のフローを示す。

【符号の説明】

- 1 濃厚流動層部
- 2 下部円錐部
- 3 中間円筒部
- 4 上部円錐部
- 5 ライザー部
- 6 サイクロン分離器
- 7 粒子降下循環ライン
- 8 ダスト濾過器
- P ライザー底部圧

【書類名】 図面

【図1】



【書類名】            要約書

【要約】

【課題】    濃厚流動層からの流動化粒子の排出とライザーによる粒子輸送の変動を減少して安定した均一輸送が可能な流動化粒子の排出輸送方法を提供する。

【解決手段】    濃厚流動層から当該濃厚流動層よりも直径の小さい高速輸送層に流動化粒子を上方へ排出輸送する方法において、濃厚流動層と高速輸送層の間に少なくとも1個の中間円筒部を設けることにより流動化粒子を安定して排出輸送することができる。

【選択図】            図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004444]

1. 変更年月日 1999年 4月 2日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 東京都港区西新橋1丁目3番12号  
氏 名 日石三菱株式会社